


  
**PCT**
  
 WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
   
 Internationales Büro
   
 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
   
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup>: **C07C 233/36, 231/12, 229/12, 227/08, C11D 1/90**

**A1**

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: **WO 96/25389**

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: **22. August 1996 (22.08.96)**

(21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/EP96/00520**

(22) Internationales Anmeldedatum: **8. Februar 1996 (08.02.96)**

(30) Prioritätsdaten: **195 05 196.3 16. Februar 1995 (16.02.95) DE**

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): **HENKEL KOMMANDITGESELLSCHAFT AUF AKTIEN [DE/DE]; D-40191 Düsseldorf (DE).**

(72) Erfinder; und  
 (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **ARMADA, Massimo [IT/IT]; Via Parri, 9, I-20017 Rho (IT). BEHLER, Ansgar [DE/DE]; Siegfriedstrasse 80, D-46240 Bottrop (DE). BIGORRA LLOSAS, Joaquim [ES/ES]; Calassanc Duran, 41, Esc. E 4º 1ª, E-08203 Sabadell (ES). HENSEN, Hermann [DE/DE]; Rathmacherweg 13, D-42781 Haan (DE). PI SUBIRANA, Rafael [ES/ES]; Roger de Flor, 10, 8º, 2ª, E-08400 Granollers (ES). SEIPEL, Werner [DE/DE]; Hofstrasse 29, D-40723 Hilden (DE). TESMANN, Holger [DE/DE]; Unter den Linden 23, D-41363 Jüchen (DE). UPHUES, Günter [DE/DE]; Robert-Koch-Strasse 45, D-40789 Monheim (DE). SCHMID, Karl-Heinz [DE/DE]; Stifterstrasse 10, E-40822 Mettmann (DE).**

(81) Bestimmungsstaaten: **JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).**

**Veröffentlicht**

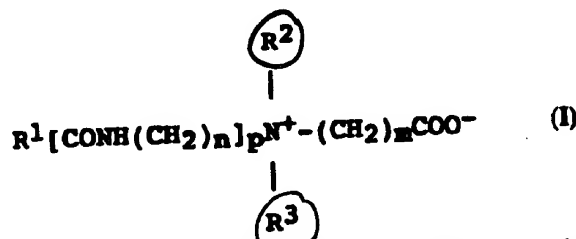
*Mit internationalem Recherchenbericht.  
 Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.*

(54) Title: **LOW-VISCOSITY AQUEOUS CONCENTRATES OF BETAINE TENSIDES**

(54) Bezeichnung: **NIEDRIGVISKOSE WÄSSRIGE KONZENTRATE VON BETAINTENSIDEN**

(57) Abstract

Low-viscosity aqueous concentrates of betaine tensides of the formula (I) in which R<sup>1</sup> is an aliphatic alkyl radical with 8 to 22 carbon atoms, R<sup>2</sup> and R<sup>3</sup> are mutually independently an alkyl and/or hydroxyalkyl radical with 1 to 4 carbon atoms, n and m are mutually independently numbers in the 1 to 5 range and p is 0 or 1, are obtained by reacting fatty amines or fatty acid aminoamides with halogen carbonic acids or their salts in the prior art manner and adding nitrogen compounds selected from the group consisting of (a) sulphobetains, (b) amphoglycinates, (c) trimethyl glycine and/or (d) dicarbonic acid mono and/or diamides as a liquifying agent.



(57) Zusammenfassung

Niedrigviskose wässrige Konzentrate von Betaintensiden der Formel (I), in der R<sup>1</sup> für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> unabhängig voneinander für einen Alkyl- und/oder Hydroxyalkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, n und m unabhängig voneinander für Zahlen im Bereich von 1 bis 5 und p für 0 oder 1 steht, werden erhalten, indem man Fettamine bzw. Fettsäureaminoamide mit Halogencarbonsäuren bzw. deren Salzen in an sich bekannter Weise umgesetzt und vor, während oder nach der Quaternierung Stickstoffverbindungen ausgewählt aus der Gruppe, die gebildet wird von (a) Sulfobetainen, (b) Amphoglycinaten, (c) Trimethylglycin und/oder (d) Dicarbonsäuremono- und/oder -diamiden als Verflüssigungsmittel zusetzt.

# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

|    |                                |    |                                   |    |                                |
|----|--------------------------------|----|-----------------------------------|----|--------------------------------|
| AM | Armenien                       | GB | Vereinigtes Königreich            | MX | Mexiko                         |
| AT | Österreich                     | GE | Georgien                          | NE | Niger                          |
| AU | Australien                     | GN | Guinea                            | NL | Niederlande                    |
| BB | Barbados                       | GR | Griechenland                      | NO | Norwegen                       |
| BE | Belgien                        | HU | Ungarn                            | NZ | Neuseeland                     |
| BF | Burkina Faso                   | IE | Irland                            | PL | Polen                          |
| BG | Bulgarien                      | IT | Italien                           | PT | Portugal                       |
| BJ | Benin                          | JP | Japan                             | RO | Rumänien                       |
| BR | Brasilien                      | KE | Kenya                             | RU | Russische Föderation           |
| BY | Belarus                        | KG | Kirgisistan                       | SD | Sudan                          |
| CA | Kanada                         | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | SE | Schweden                       |
| CF | Zentrale Afrikanische Republik | KR | Republik Korea                    | SG | Singapur                       |
| CG | Kongo                          | KZ | Kasachstan                        | SI | Slowenien                      |
| CH | Schweiz                        | LI | Liechtenstein                     | SK | Slowakei                       |
| CI | Côte d'Ivoire                  | LK | Sri Lanka                         | SN | Senegal                        |
| CM | Kamerun                        | LR | Liberia                           | SZ | Swasiland                      |
| CN | China                          | LX | Litauen                           | TD | Tschad                         |
| CS | Tschechoslowakei               | LU | Luxemburg                         | TG | Togo                           |
| CZ | Tschechische Republik          | LV | Lettland                          | TJ | Tadschikistan                  |
| DE | Deutschland                    | MC | Monaco                            | TT | Trinidad und Tobago            |
| DK | Dänemark                       | MD | Republik Moldau                   | UA | Ukraine                        |
| EE | Estland                        | MG | Madagaskar                        | UG | Uganda                         |
| ES | Spanien                        | ML | Mali                              | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| FI | Finnland                       | MN | Mongolei                          | UZ | Usbekistan                     |
| FR | Frankreich                     | MR | Mauretanien                       | VN | Vietnam                        |
| GA | Gabon                          | MW | Malawi                            |    |                                |

## **Niedrigviskose wäßrige Konzentrate von Betaintensiden**

---

### **Gebiet der Erfindung**

Die Erfindung betrifft niedrigviskose wäßrige Konzentrate von Betaintensiden mit einem Gehalt an ausgewählten Stickstoffverbindungen, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie die Verwendung der Stickstoffverbindungen als Verflüssigungsmittel für wäßrige Betainkonzentrate.

### **Stand der Technik**

Betaine bzw. amphotere Tenside sind ausgesprochen hautverträglich und weisen ausgezeichnete Reinigungseigenschaften auf. Sie eignen sich daher in besonderer Weise zur Konfektionierung einer Vielzahl von oberflächenaktiven Produkten. Zu ihrer Herstellung geht man im einfachsten Fall von tertiären Aminen aus, die mit Natriumchloracetat zu Alkylbetainen umgesetzt werden. Die Umsetzung von Fettsäureaminoamiden oder Imidazolinen mit Natriumchloracetat führt zur Bildung von amphoteren Tensiden vom Typ der Glycinate; wird als Alkylierungsmittel Acrylsäureester eingesetzt, bilden sich Aminopropionate. Verbindungen der genannten Art sind in einer

...

-2-

Vielzahl von Übersichtsartikeln beschrieben, von denen an dieser Stelle nur Parf.Cosm.Arom. 70, 67 (1986), HAPPI, 70, (Nov.1986) und Soap Cosm.Chem.Spec. 46, (Apr.1990) genannt sein sollen.

Ein besonderes Anliegen bei der Herstellung der Betaine bzw. amphoteren Tenside besteht darin, möglichst reine und somit dermatologisch und toxikologisch unbedenkliche Produkte zur Verfügung zu stellen. Unerwünscht sind beispielsweise Spuren von freien Aminen, Chloressigsäure und insbesondere Dichloressigsäure in den Tensiden. Auch Konservierungstoffe, die die Betaine bzw. amphoteren Tenside vor mikrobiellem Befall schützen sollen, sind häufig nicht erwünscht, so daß ein weiteres Bedürfnis nach Produkten besteht, die auch ohne Zusatz von Hilfsstoffen gegenüber Keimbefall stabilisiert sind. Eine dritte Aufgabe der Erfindung besteht schließlich darin, möglichst hellfarbige Produkte mit einem hohen Feststoffgehalt, vorzugsweise im Bereich von 40 bis 60 Gew.-% zur Verfügung zu stellen.

Aus dem Stand der Technik sind bereits eine Reihe von Druckschriften bekannt, die Teillösungen für die kumulierte Aufgabenstellung anbieten.

So wird beispielsweise in der DE-A1 39 39 264 (Henkel) vorgeschlagen, den Gehalt an Chloressigsäure in amphoteren Tensiden durch eine nachträgliche Behandlung der wäßrigen Lösungen mit Ammoniak, Aminosäuren oder Oligopeptiden zu verringern. Aus der DE-OS 29 26 479 (Th.Goldschmidt) ist ein Verfahren bekannt, bei dem man die Quaternierung im pH-Bereich von 7,5 bis 10,5 durchführt und so den Restgehalt an

...

-3-

freiem Alkylierungsmittel minimiert. In die gleiche Richtung weist die Lehre der DE-A 20 63 424 (Rewo), die die pH-Regulierung für die Alkylierung von Imidazolinen beschreibt. Ferner wird in der DE-C 37 26 322 (Th.Goldschmidt) ein Verfahren zur Nachbehandlung von Betainen beschrieben, bei dem man den Stoffen Mineralsäuren in solchen Mengen zusetzt, daß der pH-Wert der Lösung 1 bis 4,5 beträgt. Auf den Gehalt an Dichlor-essigsäure haben diese Verfahren jedoch keinen Einfluß. In der DE-A1 42 05 880 (Th.Goldschmidt) wird zur Minimierung von chlorierten Verunreinigungen vorgeschlagen, die Betaine in wäßriger Lösung bei einer Temperatur im Bereich von 115 bis 180°C und damit unter erhöhtem Druck durchzuführen. Schließlich sind aus der DE-C1 42 07 386 (Th.Goldschmidt) Betainkonzentrate mit Feststoffgehalten oberhalb von 40 Gew.-% bekannt, die 1 bis 3 Gew.-% freie Fettsäure und 0 bis 4 Gew.-% Glycerin enthalten, einen Gehalt an freiem Amidoamin von weniger als 1 Gew.-% und einen pH-Wert im Bereich von 5 bis 8 aufweisen.

Nachdem keines dieser Verfahren des Stands der Technik die kumulierte Aufgabenstellung zufriedenstellend zu lösen vermag, hat die Aufgabe der Erfindung darin bestanden, neue wäßrige Betaine zur Verfügung zu stellen, die fließ- und pumpfähig sind, auch bei längerer Lagerung nicht vergelen, einen Feststoffgehalt von mindestens 40 Gew.-% und einen minimierten Gehalt an unerwünschten Nebenbestandteilen, insbesondere chlorierten Stoffen und freien Aminen aufweisen.

...

Beschreibung der Erfindung

Gegenstand der Erfindung sind niedrigviskose wäßrige Konzentrate von Betaintensiden der Formel (I),



in der  $\text{R}^1$  für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen,  $\text{R}^2$  und  $\text{R}^3$  unabhängig voneinander für einen Alkyl- und/oder Hydroxyalkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,  $n$  und  $m$  unabhängig voneinander für Zahlen im Bereich von 1 bis 5 und  $p$  für 0 oder 1 steht, erhältlich durch Kondensation von Fettaminen bzw. Fettsäureaminoamiden mit Halogencarbonsäuresalzen, die sich dadurch auszeichnen, daß sie einen Gehalt an Stickstoffverbindungen ausgewählt aus der Gruppe, die gebildet wird von

- (a) Sulfobetainen,
- (b) Amphoglycinaten,
- (c) Trimethylglycin und/oder
- (d) Dicarbonsäuremono- und/oder -diamiden

als Verflüssigungsmittel aufweisen.

Überraschenderweise wurde gefunden, daß der Zusatz der genannten Stickstoffverbindungen die Viskosität der Konzentrate so weit herabsetzt, daß nunmehr fließ- und pumpfähige Pro-

-5-

dukte mit einem Feststoffgehalt im Bereich von 40 bis 55 Gew.-% zur Verfügung gestellt werden können, die auch bei längerer Lagerung keine Tendenz zur Vergelung zeigen. Die erfindungsgemäßen Konzentrate sind zudem hellfarbig und weisen einen minimierten Gehalt an chlorierten Verbindungen auf. Zur Sicherstellung einer ausreichend niedrigen Viskosität ist ein Gehalt an freiem Aminoamid nicht erforderlich. Zudem sind die Konzentrate auch ohne Zusatz von Konservierungsmitteln gegen antimikrobiellen Befall ausreichend geschützt.

#### Betaine

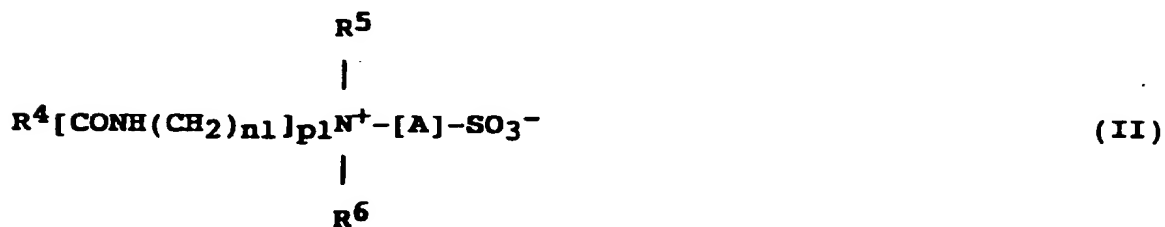
Betaine, genauer Fettalkylbetaine und Fettsäureamidobetaine, stellen beide bekannte Stoffgruppen dar. Vorzugsweise bezieht sich die Erfindung auf

- \*\*\* Fettalkylbetaine der Formel (I), in der  $R^1$  für einen Alkylrest mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen,  $R^2$  und  $R^3$  für jeweils eine Methylgruppe, n und m unabhängig voneinander für 1, 2 oder 3 und p für 0 steht, bzw.
- \*\*\* Fettsäureamidobetaine der Formel (I), in der  $R^1$  für einen Alkylrest mit 7 bis 17 Kohlenstoffatomen,  $R^2$  und  $R^3$  für jeweils eine Methylgruppe, n und m unabhängig voneinander für 1, 2 oder 3 und p für 1 steht.

Sulfobetaine

Sulfobetaine stellen bekannte amphotere Tenside dar, die man durch Quaternierung von Fettaminen oder Fettsäureaminoamiden vorzugsweise mit Chloralkansulfonaten wie beispielsweise Chlorhydroxypropansulfonsäure erhalten kann; letztere ist ihrerseits durch Umsetzung von Epichlorhydrin mit Natriumhydrogensulfit zugänglich. Eine Übersicht zu diesem Thema findet sich beispielsweise in Tens.Surf.Det., 28, 235, 337 (1991).

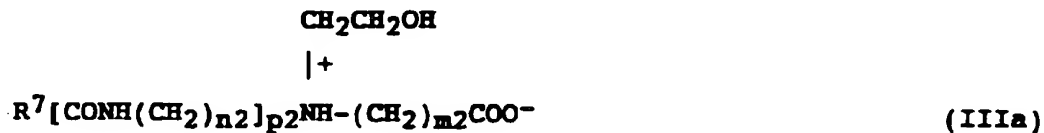
Sulfobetaine, die als Verflüssigungsmittel der Gruppe (a) in Betracht kommen, folgen beispielsweise der Formel (II),



in der R<sup>4</sup> für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22, vorzugsweise 8 bis 18 Kohlenstoffatomen, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> unabhängig voneinander für einen Alkyl- und/oder Hydroxyalkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, n<sub>1</sub> für Zahlen im Bereich von 1 bis 5, p<sub>1</sub> für 0 oder 1 und A für eine gegebenenfalls hydroxysubstituierte Alkylengruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht. Typische Beispiele sind Quaternierungsprodukte vom Kokosdimethylamin oder Kokosfettsäureamidopropylamin mit Chlorhydroxypropansulfonsäure oder deren Natriumsalz.

Amphoglycinate

Amphoglycinate, die als Verflüssigungsmittel der Gruppe (b) in Betracht kommen, folgen der Formeln (IIIa) bzw. (IIIb),



in der  $\text{R}^7$  für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22, vorzugsweise 8 bis 18 Kohlenstoffatomen,  $n2$  und  $m2$  unabhängig voneinander für Zahlen im Bereich von 1 bis 5,  $p2$  für 0 oder 1 und X für ein Alkalimetall steht. Besonders geeignete Amphoglycinate leiten sich von Kokosethanolamin oder Kokosfettsäureethylethanolamid ab. Neben den Amphoglycinaten können den erfindungsgemäßen Betainen auch die entsprechenden Imidazolinvorstufen vor bzw. während der Quaternierung zugesetzt werden. Im Verlauf dieser Ausführungsform werden die Amphoglycinate in situ erzeugt und verflüssigen das Produkt.

Dicarbonsäureamide

Als Verflüssigungsmittel der Gruppe (c) kommen Dicarbonsäuremono- und/oder -diamide in Frage. Hierbei handelt es sich vorzugsweise um Umsetzungsprodukte von Dicarbonsäuren der Formel (IV)

-8-



(IV)

in der A für eine lineare oder verzweigte, aliphatische, cycloaliphatische oder aromatische Alkylengruppe mit 1 bis 36 Kohlenstoffatomen steht, mit Aminen der Formel (V)



(V)

in der  $\text{R}^8$  für einen linearen oder verzweigten, aliphatischen, cycloaliphatischen, gegebenenfalls hydroxysubstituierten und/oder aminosubstituierten Alkylrest mit 1 bis 18, vorzugsweise 2 bis 4 Kohlenstoffatomen und  $\text{R}^9$  für Wasserstoff oder  $\text{R}^8$  steht.

Typische Beispiele sind Umsetzungsprodukte von Bernsteinsäure, Maleinsäure, Adipinsäure, Phthalsäure und/oder Dimerfettsäure mit Ethylamin, Ethanolamin, Propanolamin, Diethanolamin und insbesondere Dimethylaminopropylamin. Letzteres wird vorzugsweise vor oder während der Quaternierung zugesetzt und in situ betainisiert. Besonders bevorzugt sind Umsetzungsprodukte von Dimerfettsäure mit Dimethylaminopropylamin bzw. Adipinsäure mit Diethylentriamin.

#### Betainkonzentrate

Die erfindungsgemäßen Betainkonzentrate weisen einen Feststoffgehalt von mindestens 40, vorzugsweise von 40 bis 60 und insbesondere von 42 bis 48 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - auf. Der Aktivsubstanzgehalt, d.h. der Gehalt an Betainen, liegt in der Regel 8 bis 12 Gew.-% niedriger. Der Ge-

---

-9-

halt an Stickstoffverbindungen in den Konzentrat kann 1 bis 40, vorzugsweise 2 bis 25 und insbesondere 4 bis 8 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - betragen. Der Anteil an anorganischen Salzen, beispielsweise Natriumchlorid, kann 5 bis 10 Gew.-% ausmachen.

Im Hinblick auf die Lagerstabilität der Produkte hat es sich als vorteilhaft erwiesen, die Konzentrate auf einen pH-Wert im Bereich von 5 bis 8 einzustellen.

Der Gehalt an freiem Fettsäureaminoamid und Seife liegt üblicherweise jeweils unter 1 und insbesondere unter 0,8 Gew.-%, der Gehalt an Mono- bzw. Dichloressigsäure jeweils unter 5 ppm - bezogen auf die Konzentrate. In einer besonderen Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens kann den Betainkonzentrat 0,1 bis 0,8 Gew.-% freie C<sub>12</sub>-C<sub>18</sub>-Fettsäure und/oder 0,1 bis 3 Gew.-% eines Polyols, vorzugsweise Glycerin, Sorbitol oder Butylglucosid zugesetzt werden.

#### Kondensationsreaktion

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung niedrigviskoser wäßriger Konzentrate von Betaintensiden, bei dem man Fettamine bzw. Fettsäureaminoamide mit Halogencarbonsäuren bzw. deren Salzen in an sich bekannter Weise umsetzt, und Stickstoffverbindungen ausgewählt aus der Gruppe, die gebildet wird von

- (a) Sulfobetainen,
- (b) Amphoglycinaten,

-10-

- (c) Trimethylglycin und/oder
- (d) Dicarbonsäuremono- und/oder -diamiden

als Verflüssigungsmittel insbesondere vor, auch auch während oder nach der Quaternierung zusetzt.

Die Durchführung der Kondensationsreaktion erfolgt in an sich bekannter Weise, wobei man das Fettamin bzw. Fettsäureaminoamid, vorzugsweise C<sub>12/18</sub>- bzw. C<sub>8/18</sub>-Kokosfettamine bzw. -Fettsäureaminoamide, und die Halogencarbonsäuren bzw. deren Salze, vorzugsweise Natriumchloracetat, unter Einhaltung eines pH-Wertes im Bereich von 7 bis 8 erhitzt und nachdem der Gehalt an freiem Aminoamid unter 0,5 Gew.-% abgesunken ist, die Reaktionsmischung in einem Druckgefäß über einen Zeitraum von 1 bis 2 h einer Nachbehandlung bei einer Temperatur von 100 bis 140°C und einem pH = 10 bis 14 - gemessen in 10 Gew.-%iger Produktlösung - unterwirft. Nach Abschluß der Nachreaktion empfiehlt es sich, das Konzentrat wieder auf einen neutralen pH-Wert einzustellen. Produkte mit besonders niedriger Viskosität werden erhalten, wenn man die Stickstoffverbindungen vor. bzw, während der Quaternierungsreaktion zusetzt.

#### Gewerbliche Anwendbarkeit

Die erfindungsgemäßen wäßrigen Betaine sind auch hochkonzentriert flüssig, lagerstabil und weisen einen minimierten Anteil an unerwünschten Nebenbestandteilen auf. Sie eignen sich für die Herstellung oberflächenaktiver Mittel, insbesondere von Reinigungsprodukten sowie Haarbehandlungs- und -pflege-

mitteln, in denen sie in Mengen von 1 bis 30, vorzugsweise 2 bis 10 Gew.-% - bezogen auf die Mittel - enthalten sein können.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung betrifft daher die Verwendung der genannten Stickstoffverbindungen als Verflüssigungsmittel zur Herstellung von niedrigviskosen wäßrigen Konzentraten von Betaintensiden.

Die folgenden Beispiele sollen den Gegenstand der Erfindung näher erläutern, ohne ihn darauf einzuschränken.

### Beispiele

#### Beispiel 1:

227,2 g (1,91 mol) Natriumchloracetat wurden zusammen mit 190 g Sulfobetain Dehyton(R) F512 (Henkel KGaA, Betaingehalt 36 Gew.-%), 6,2 g Laurinsäure (0,08 Gew.-%) und 40 g (5 Gew.-% - jeweils bezogen auf das zu bildende Betain) Glycerin in ca. 780 ml Wasser gelöst. Anschließend wurden bei 40°C 497,5 g (1,63 mol) eines Fettsäureaminoamids eingerührt, das durch Amidierung einer gehärteten Kokosfettsäure mit 3-N,N-Dimethylaminopropylamin hergestellt worden war und einen Gehalt von 4,6 Gew.-% titrierbaren Stickstoff aufwies. Nach Erwärmen des Gemisches auf 90°C und Bildung einer klaren, dünnflüssigen Lösung wurden weitere 55,3 g (0,18 mol) des Fettsäureaminoamids zugegeben. Unter Einhaltung eines pH-Wertes zwischen 7,5 und 9,0 wurde die Reaktion fortgesetzt, bis nach ca. 2 h der Gehalt an freien Aminfunktionen unter 0,5 mmol/ 100 g, d.h. < 0,15 % Fettsäureaminoamid (ermittelt durch HPLC-Analyse) abgesunken war. Dem Ansatz wurden nun entsprechend einem pH-Wert von 12,5 in 10 Gew.-%iger Produktlösung 43,2 g 37 Gew.-%ige Natronlauge zugesetzt und das Produkt in einer Druckapparatur 1 h bei 120°C gerührt. Nach der Abkühlung wurde der Produkt-pH-Wert mit 53,8 g 24-Gew.-%iger Salzsäure auf 7,0 eingestellt. Die Kenndaten des niedrigviskosen Produktes sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Beispiel 2

Beispiel 1 wurde anstelle des Sulfobetains unter Einsatz von 200 g eines Amphoglycinats auf Basis Kokosfettsäureaminoethylamid (40 Gew.-% AS) wiederholt. Die Kenndaten des niedrigviskosen Produktes sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Beispiel 3

Beispiel 1 wurde anstelle des Sulfobetains unter Einsatz von 40 g Trimethylglycin (100 Gew.-% AS) wiederholt. Die Kenndaten des niedrigviskosen Produktes sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Beispiel 4:

Beispiel 1 wurde anstelle des Sulfobetains unter Einsatz von 40 g eines Monoamids einer technischen Dimerfettsäure mit Dimethylaminopropylamin (100 Gew.-% AS) wiederholt. Die Kenndaten des niedrigviskosen Produktes sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Vergleichbeispiel VI

Beispiel 1 wurde ohne Zugabe einer Stickstoffverbindung wiederholt. Die Kenndaten des Produktes sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Alle Prozentangaben verstehen sich als Gew.-%.

Tabelle 1

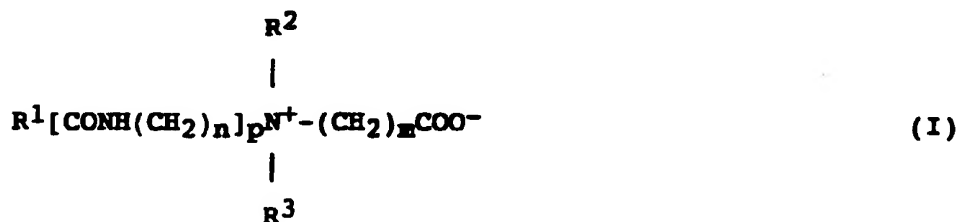
## Kenndaten der Versuchsprodukte

| Bsp. | <u>BET</u><br>% | <u>NVb.</u><br>% | <u>FFS</u><br>% | <u>GLY</u><br>% | <u>NaCl</u><br>% | <u>H<sub>2</sub>O</u><br>% | <u>Vis.</u><br>mPa · s |
|------|-----------------|------------------|-----------------|-----------------|------------------|----------------------------|------------------------|
| 1    | 33,2            | 4,0              | 0,6             | 2,3             | 7,8              | 48,8                       | 210                    |
| 2    | 32,2            | 4,5              | 0,8             | 2,3             | 7,9              | 48,9                       | 230                    |
| 3    | 36,9            | 2,3              | 0,6             | 2,3             | 7,9              | 48,6                       | 230                    |
| 4    | 36,5            | 2,7              | 0,6             | 2,3             | 7,9              | 48,6                       | 200                    |
| V1   | 37,1            | -                | 0,6             | 2,4             | 7,7              | 48,8                       | fest                   |

Legende: BET = Betain  
 NVb. = Stickstoffverbindung  
 FFS = Freie Fettsäure  
 GLY = Glycerin  
 Vis = Viskosität nach Brookfield;  
 20°C, 50 Upm, Spindel 3

Patentansprüche

1. Niedrigviskose wäßrige Konzentrate von Betaintensiden der Formel (I),



in der  $\text{R}^1$  für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen,  $\text{R}^2$  und  $\text{R}^3$  unabhängig voneinander für einen Alkyl- und/oder Hydroxyalkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,  $n$  und  $m$  unabhängig voneinander für Zahlen im Bereich von 1 bis 5 und  $p$  für 0 oder 1 steht, erhältlich durch Kondensation von Fettaminen bzw. Fettsäureaminoamiden mit Halogencarbonsäuresalzen, dadurch gekennzeichnet, daß sie einen Gehalt an Stickstoffverbindungen ausgewählt aus der Gruppe, die gebildet wird von

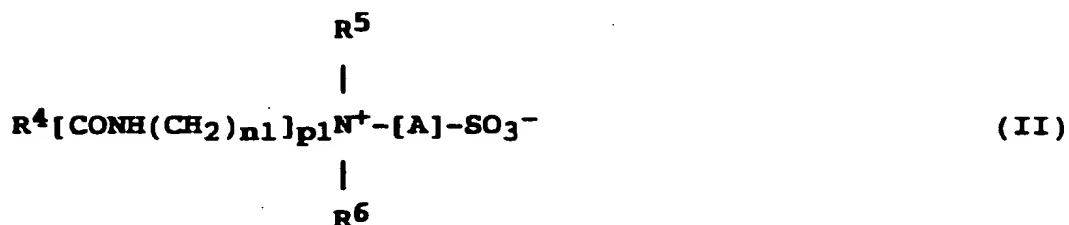
- (a) Sulfobetainen,
- (b) Amphoglycinaten,
- (c) Trimethylglycin und/oder
- (d) Dicarbonsäuremono- und/oder -diamiden

als Verflüssigungsmittel aufweisen.

2. Konzentrate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Betaintenside der Formel (I) folgen, in der  $\text{R}^1$  für

einen Alkylrest mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen,  $R^2$  und  $R^3$  für jeweils eine Methylgruppe,  $n$  und  $m$  unabhängig voneinander für 1, 2 oder 3 und  $p$  für 0 steht.

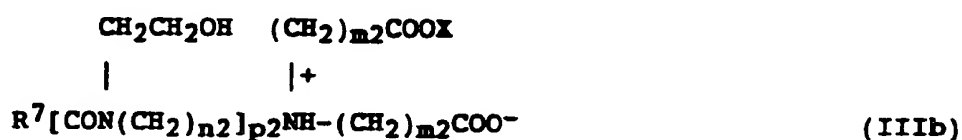
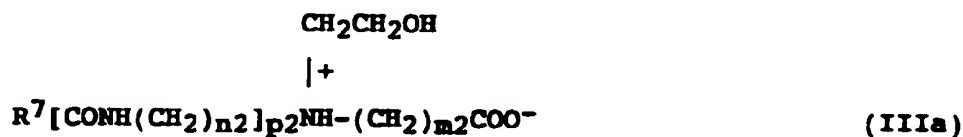
3. Konzentrate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Betaintenside der Formel (I) folgen, in der  $R^1$  für einen Alkylrest mit 7 bis 17 Kohlenstoffatomen,  $R^2$  und  $R^3$  für jeweils eine Methylgruppe,  $n$  und  $m$  unabhängig voneinander für 1, 2 oder 3 und  $p$  für 1 steht.
4. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß sie Sulfobetaine der Formel (II) enthalten,



in der  $R^4$  für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen,  $R^5$  und  $R^6$  unabhängig voneinander für einen Alkyl- und/oder Hydroxyalkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,  $n1$  für Zahlen im Bereich von 1 bis 5,  $p1$  für 0 oder 1 und  $A$  für eine gegebenenfalls hydroxysubstituierte Alkylengruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht.

-17-

5. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß sie Amphoglycinate der Formel (IIIa) bzw. (IIIb) enthalten,



in der  $\text{R}^7$  für einen aliphatischen Alkylrest mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen,  $n2$  und  $m2$  unabhängig voneinander für Zahlen im Bereich von 1 bis 5,  $p2$  für 0 oder 1 und X für ein Alkalimetall steht.

6. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß sie Umsetzungsprodukte von Dicarbonsäuren der Formel (IV)



in der A für eine lineare oder verzweigte, aliphatische, Cycloaliphatische oder aromatische Alkylengruppe mit 1 bis 36 Kohlenstoffatomen steht, mit Aminen der Formel (V)



in der R<sup>8</sup> für ein n lin aren od r verzweigten, aliphatischen, cycloaliphatischen, gegebenenfalls hydroxysubstituierten und/oder aminosubstituierten Alkylrest mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen und R<sup>9</sup> für Wasserstoff oder R<sup>8</sup> steht.

7. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Gehalt an Stickstoffverbindungen im Bereich von 1 bis 40 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - liegt.
  8. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Feststoffanteil im Bereich von 40 bis 55 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - liegt.
  9. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der pH-Wert im Bereich von 5 bis 8 liegt.
  10. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Gehalt an freiem Fettsäureaminoamid unter 1 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - liegt.
  11. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Gehalt an Seife unter 1 Gew.-% - bezogen auf die Konzentrate - liegt.
  12. Konzentrate nach den Ansprüchen 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Gehalt an Mono- bzw. Dichloressigsäure jeweils unter 5 ppm - bezogen auf die Konzentrate - liegt.
-

13. Verfahren zur Herstellung niedrigviskoser wäßriger Konzentrate von Betaintensiden nach Anspruch 1, bei dem man Fettamine bzw. Fettsäureaminoamide mit Halogencarbonsäuren bzw. deren Salzen in an sich bekannter Weise umsetzt, dadurch gekennzeichnet, daß man Stickstoffverbindungen ausgewählt aus der Gruppe, die gebildet wird von

- (a) Sulfobetainen,
- (b) Amphoglycinaten,
- (c) Trimethylglycin und/oder
- (d) Dicarbonsäuremono- und/oder -diamiden

als Verflüssigungsmittel vor, während oder nach der Quaternierung zusetzt.

14. Verwendung von Stickstoffverbindungen nach Anspruch 1 als Verflüssigungsmittel zur Herstellung von niedrigviskosen wäßrigen Konzentraten von Betaintensiden.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 96/00520

## A. CLASSIFICATION F SUBJECT MATTER

IPC 6 C07C233/36 C07C231/12 C07C229/12 C07C227/08 C11D1/90

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C07C C11D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| A          | EP,A,0 353 580 (GOLDSCHMIDT AG TH) 7<br>February 1990<br>see page 5, line 43 - line 46<br>see page 3, line 13 - line 38; claims;<br>examples<br>--- | 1,8                   |
| A          | DE,C,42 07 386 (GOLDSCHMIDT AG) 5 August<br>1993<br>cited in the application<br>see page 3, line 43 - line 60; claims;<br>examples<br>---           | 1,8                   |
| A          | DE,C,42 27 391 (GOLDSCHMIDT AG TH) 30<br>September 1993<br>see page 5, line 12 - line 27<br>see page 3, line 42 - page 4, line 21<br>---<br>-/--    | 1,6                   |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

\*A\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 June 1996

Date of mailing of the international search report

13.06.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Seufert, G

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No

PCT/EP 96/00520

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                           | Relevant to claim No. |
|----------|--|-----------------------|
| A        | DE,A,42 40 154 (HENKEL KGAA) 1 June 1994<br>see page 2, line 33 - line 65<br>---                             | 5                     |
| P,X      | EP,A,0 647 613 (WITCO SURFACTANTS GMBH) 12<br>April 1995<br>see page 3, line 15 - line 45; examples<br>----- | 1,3,7-9,<br>13,14     |

1

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. l. Application No

PCT/EP 96/00520

| Patent document<br>cited in search report | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP-A-0353580                              | 07-02-90            | DE-C- 3826654              | 31-01-91            |
|   |                     | DE-D- 58905750             | 04-11-93            |
|   |                     | ES-T- 2045290              | 16-01-94            |
|   |                     | JP-A- 2091050              | 30-03-90            |
| -----                                     |                     |                            |                     |
| DE-C-4207386                              | 05-08-93            | DE-D- 59302220             | 23-05-96            |
|   |                     | EP-A- 0560114              | 15-09-93            |
|   |                     | JP-A- 6049435              | 22-02-94            |
|   |                     | US-A- 5354906              | 11-10-94            |
| -----                                     |                     |                            |                     |
| DE-C-4227391                              | 30-09-93            | EP-A- 0583702              | 23-02-94            |
| -----                                     |                     |                            |                     |
| DE-A-4240154                              | 01-06-94            | WO-A- 9412477              | 09-06-94            |
|   |                     | EP-A- 0670830              | 13-09-95            |
|   |                     | JP-T- 8503483              | 16-04-96            |
| -----                                     |                     |                            |                     |
| EP-A-0647613                              | 12-04-95            | DE-A- 4334467              | 13-04-95            |
|   |                     | CA-A- 2129937              | 09-04-95            |
|   |                     | US-A- 5464565              | 07-11-95            |
| -----                                     |                     |                            |                     |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 96/00520

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07C233/36 C07C231/12 C07C229/12 C07C227/08 C11D1/90

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole)

IPK 6 C07C C11D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| A          | EP,A,0 353 580 (GOLDSCHMIDT AG TH)<br>7. Februar 1990<br>siehe Seite 5, Zeile 43 - Zeile 46<br>siehe Seite 3, Zeile 13 - Zeile 38;<br>Ansprüche; Beispiele<br>--- | 1,8                |
| A          | DE,C,42 07 386 (GOLDSCHMIDT AG) 5. August<br>1993<br>in der Anmeldung erwähnt<br>siehe Seite 3, Zeile 43 - Zeile 60;<br>Ansprüche; Beispiele<br>---               | 1,8                |
| A          | DE,C,42 27 391 (GOLDSCHMIDT AG TH)<br>30. September 1993<br>siehe Seite 5, Zeile 12 - Zeile 27<br>siehe Seite 3, Zeile 42 - Seite 4, Zeile<br>21<br>---<br>-/-    | 1,6                |

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Δ" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. Juni 1996

Abstimmungsdatum des internationalen Recherchenberichts

13.06.96

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Seufert, G

Internationales Abkürzungszeichen  
PCT/EP 96/00520

**Int. nationales Aktenzeichen**

**PCT/EP 96/00520**

| Kategorie | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                    | Betr. Anspruch Nr. |
|-----------|---|--------------------|
| A         | DE,A,42 40 154 (HENKEL KGAA) 1.Juni 1994<br>siehe Seite 2, Zeile 33 - Zeile 65<br>---                                 | 5                  |
| P,X       | EP,A,0 647 613 (WITCO SURFACTANTS GMBH)<br>12.April 1995<br>siehe Seite 3, Zeile 15 - Zeile 45;<br>Beispiele<br>----- | 1,3,7-9,<br>13,14  |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

 Int. nationales Abkommen  
 PCT/EP 96/00520

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP-A-0353580                                       | 07-02-90                      | DE-C- 3826654                     | 31-01-91                      |
|  |                               | DE-D- 58905750                    | 04-11-93                      |
|  |                               | ES-T- 2045290                     | 16-01-94                      |
|  |                               | JP-A- 2091050                     | 30-03-90                      |
| -----  |                               |                                   |                               |
| DE-C-4207386                                       | 05-08-93                      | DE-D- 59302220                    | 23-05-96                      |
|  |                               | EP-A- 0560114                     | 15-09-93                      |
|  |                               | JP-A- 6049435                     | 22-02-94                      |
|  |                               | US-A- 5354906                     | 11-10-94                      |
| -----  |                               |                                   |                               |
| DE-C-4227391                                       | 30-09-93                      | EP-A- 0583702                     | 23-02-94                      |
| -----  |                               |                                   |                               |
| DE-A-4240154                                       | 01-06-94                      | WO-A- 9412477                     | 09-06-94                      |
|  |                               | EP-A- 0670830                     | 13-09-95                      |
|  |                               | JP-T- 8503483                     | 16-04-96                      |
| -----  |                               |                                   |                               |
| EP-A-0647613                                       | 12-04-95                      | DE-A- 4334467                     | 13-04-95                      |
|  |                               | CA-A- 2129937                     | 09-04-95                      |
|  |                               | US-A- 5464565                     | 07-11-95                      |
| -----  |                               |                                   |                               |

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

---